

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

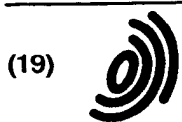
Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**



(19)

Europäisches Patentamt

European Patent Office

Office européen des brevets



(11)

EP 0 921 584 A2

(12)

## EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(43) Veröffentlichungstag:  
09.06.1999 Patentblatt 1999/23

(51) Int. Cl.<sup>6</sup>: H01M 8/06, C01B 3/38,  
C01B 3/48

(21) Anmeldenummer: 98120914.1

(22) Anmeldetag: 04.11.1998

(84) Benannte Vertragsstaaten:  
AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LU  
MC NL PT SE  
Benannte Erstreckungsstaaten:  
AL LT LV MK RO SI

- Christen, Andreas  
53940 Kehr (DE)
- Hell, Dietmar  
88477 Hörenhausen (DE)
- Strobel, Barbara  
89160 Dornstadt (DE)
- Wieland, Steffen  
70180 Stuttgart (DE)
- Zur Megede, Detlef Dr.  
73230 Kirchheim/Teck (DE)

(30) Priorität: 05.12.1997 DE 19754012

(71) Anmelder:  
DBB Fuel Cell Engines GmbH  
73230 Kirchheim/Teck-Nabern (DE)

(72) Erfinder:  
• Autenrieth, Rainer  
89155 Erbach (DE)  
• Boneberg, Stefan  
89134 Blaustein (DE)

(74) Vertreter:  
Kocher, Klaus-Peter et al  
Daimler-Benz Aktiengesellschaft,  
FTP/S - C106  
70546 Stuttgart (DE)

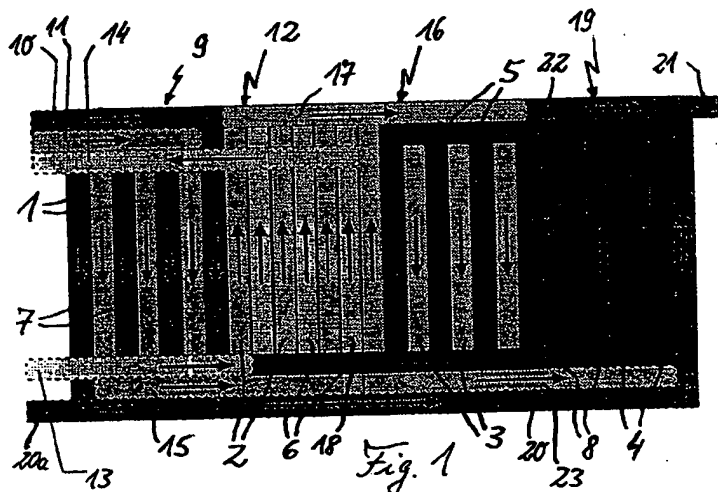
(54) Anlage zur Wasserdampfpreformierung eines Kohlenwasserstoffs

(57) Die Erfindung bezieht sich auf eine Anlage zur Wasserdampfpreformierung eines Kohlenwasserstoffs.

Erfindungsgemäß beinhaltet die Anlage eine Reaktorbaueinheit vom Plattenstapel- und/oder Rohrbündeltyp, die einen Verdampfer, eine Vorreformierungseinheit, einen Hauptreformer, eine CO-Entfernungseinheit und eine katalytische Brenneinheit integriert enthält, wobei zum einen der Verdampfer und der

Hauptreformer mit der katalytischen Brenneinheit und zum anderen die Vorreformierungseinheit mit der CO-Entfernungseinheit in Wärmekontakt stehen.

Verwendung z.B. zur Wasserdampfpreformierung von Methanol zwecks Gewinnung von Wasserstoff für die Brennstoffzellen eines brennstoffzellenbetriebenen Kraftfahrzeugs.



einem aus beiden Typen kombinierten Typ, die mindestens einen Verdampfer, eine Vorreformierungseinheit, einen Hauptreformer, eine CO-Entfernungseinheit und eine katalytische Brenneinheit in integrierter Form enthält. Mit dem Vorhandensein dieser Komponenten läßt sich ein Reformierungsumsatz mit hohem Wirkungsgrad erzielen, wobei die Konzentration des im Reformatgas enthaltenen Kohlenmonoxids durch die CO-Entfernungseinheit auf einen gewünschten Wert begrenzt werden kann. Die integrierte Bildung dieser Anlagenkomponenten in der gemeinsamen Reaktorbaueinheit schafft die Voraussetzung für eine hohe Dynamik der Anlage, so daß sie in zufriedenstellender Weise auf Lastwechsel reagieren kann, wie sie z.B. für den Betrieb von Kraftfahrzeugen typisch sind. Das Betriebsverhalten der Anlage wird weiter dadurch günstig beeinflusst, daß einerseits der Verdampfer und der Hauptreformer mit der katalytischen Brenneinheit und andererseits die Vorreformierungseinheit mit der CO-Entfernungseinheit jeweils direkt über ein wärmeleitendes Trennmedium in Wärmekontakt stehen.

[0009] Bei einer nach Anspruch 2 weitergebildeten Anlage beinhaltet die Brenneinheit wenigstens zwei katalytische Brenner, von denen der eine mit dem Verdampfer und der andere mit dem Hauptreformer unter Bildung je eines Moduls mit Wärmeübertragerstruktur in Wärmekontakt steht. Die Modulbauweise für die Verdampfer/Verbrenner-Komponente und die Hauptreformer/Brenner-Komponente begünstigt einen flexiblen, modularen Aufbau der Reaktorbaueinheit.

[0010] Bei einer nach Anspruch 3 weitergebildeten Anlage beinhaltet die Vorreformierungseinheit ebenso zwei Stufen wie die CO-Entfernungseinheit, wobei sich letztere aus einer CO-Shiftstufe und einer dieser nachgeschalteten CO-Oxidationsstufe zusammensetzt. Dabei bilden die CO-Oxidationsstufe mit der ersten Vorreformierungsstufe sowie die CO-Shiftstufe mit der zweiten Vorreformierungsstufe je ein Modul mit Wärmeübertragerstruktur. Diese Modulbauweise begünstigt wiederum, in erhöhtem Maße bei Verwendung zusammen mit dem Verdampfer/Brenner- und dem Hauptreformer/Brenner-Modul der nach Anspruch 2 ausgestalteten Anlage, einen kompakten, modularen Aufbau der Reaktorbaueinheit und damit der Anlage insgesamt. Dabei sind in einer weiteren Ausgestaltung dieser Modulbauweise die betreffenden vier Module gemäß Anspruch 4 nebeneinanderliegend angeordnet. In einer weiteren Ausgestaltung dieser Maßnahme sind gemäß Anspruch 5 thermisch isolierende Trennelemente zwischen jeweils aufeinanderfolgenden Modulen vorgesehen.

[0011] Bei einer nach Anspruch 6 weitergebildeten Anlage sind im Oxidationsstufen/Vorreformierungs-Modul und/oder im Shiftstufen/Vorreformierungs-Modul Heizkanäle vorgesehen, durch die heißes Verbrennungsabgas der katalytischen Brenneinheit durchgeführt werden kann, um diese Module aktiv zu beheizen.

[0012] Vorteilhafte Ausführungsformen der Erfindung

sind in den Zeichnungen dargestellt und werden nachfolgend beschrieben. Hierbei zeigen:

- Fig. 1 eine schematische Längsschnittansicht durch eine Reaktorbaueinheit vom Plattenstapeltyp für eine Anlage zur Wasserdampf-reformierung eines Kohlenwasserstoffs,
- Fig. 2 eine schematische Längsschnittansicht einer weiteren Reaktorbaueinheit vom Plattenstapeltyp für eine Anlage zur Wasserdampf-reformierung eines Kohlenwasserstoffs,
- Fig. 3 eine Draufsicht auf eine für die Reaktorbaueinheiten der Fig. 1 und 2 verwendbare Einzelplatte und
- Fig. 4 eine Draufsicht auf eine gemäß Fig. 1 aufgebaute Reaktorbaueinheit.
- [0013] Die in Fig. 1 schematisch dargestellte Reaktorbaueinheit vom Plattenstapeltyp eignet sich als zentraler Teil einer Anlage zur Wasserdampf-reformierung eines Kohlenwasserstoffs, insbesondere einer mobilen Anlage zur Wasserdampf-reformierung von Methanol im mobilen Einsatz in einem brennstoffzellenbetriebenen Kraftfahrzeug, um den für die Brennstoffzellen benötigten Wasserstoff aus flüssig mitgeführtem Methanol zu erzeugen. In die Reaktorbaueinheit sind ein Verdampfer 1, eine diesem nachgeschaltete Vorreformierungseinheit mit einer ersten Vorreformierungsstufe 2 und einer dieser nachgeschalteten zweiten Vorreformierungsstufe 3, ein an die zweite Vorreformierungsstufe 3 anschließender Hauptreformer 4, eine dem Hauptreformer nachgeschaltete CO-Entfernungseinheit aus einer CO-Shiftstufe 5 und einer dieser nachgeschalteten CO-Oxidationsstufe 6 sowie zwei katalytische Brenner 7, 8 integriert.
- [0014] Dabei steht der eine katalytische Brenner 7 mit dem Verdampfer 1 in Wärmekontakt, indem diese beiden Anlagenkomponenten von einem entsprechenden Verdampfer/Brenner-Modul 9 gebildet sind, das einen Plattenstapelaufbau mit einer Wärmeübertragerstruktur besitzt, bei der mehrere parallele Schichten des Verdampfers 1 einerseits und des Brenners 7 andererseits in alternierender Folge angeordnet sind und dadurch über je eine wärmeleitende Plattenwandung in Wärmekontakt stehen. Das Verdampfer/Brenner-Modul 9 besitzt einen Brenneinlaß 10 mit zugehörigem Verteilertkanal zu den parallelen Brennerschichten und einen Verdampferinlaß 11 mit zugehörigem Verteilertkanal zur Zuführung von Methanol und Wasser zu den parallelen Verdampferschichten.
- [0015] An das Verdampfer/Brenner-Modul 9 schließt sich ein Oxidationsstufen/Vorreformierungs-Modul 12 an, das wiederum einen Plattenstapelaufbau mit Wärmeübertragerstruktur besitzt, bei der zwei Gruppen

hat nur einen geringen Platzbedarf und weist aufgrund der geringen Oberfläche vergleichsweise niedrige Wärmeverluste auf. Es ergibt sich ein hoher Wirkungsgrad der Anlage, wozu auch beiträgt, daß die Abwärme der CO-Oxidationsstufe 6 und der CO-Shiftstufe 5 zum Heizen der Vorreformierungsstufen 2, 3 genutzt wird. Durch die Plattenstapelanordnung und die Anordnung der verschiedenen Funktionskomponenten der Anlage wirken Selbstregelmechanismen, die den Steuerungs- und Regelaufwand für die Anlage gering halten und gleichzeitig eine hohe Zuverlässigkeit des Systems gewährleisten. Durch das geringe Volumen der Reaktorbaueinheit und die kurzen Gasströmungswege besitzt die Reaktorbaueinheit und damit die Anlage insgesamt eine vergleichsweise hohe Dynamik und ein schnelles Aufheizverhalten beim Kaltstart, wie es gerade auch für den mobilen Einsatz in brennstoffzellenbetriebenen Kraftfahrzeugen wegen den dort typischen, raschen Lastwechseln erwünscht ist, da die Gesamtmasse der Reaktorbaueinheit relativ niedrig ist und außerdem Heizelemente in Form der katalytischen Brenner integriert sind. Der modulare Aufbau ermöglicht eine einfache Hochskalierung auf jedes jeweils gewünschte Leistungsvermögen der Anlage.

[0023] Fig. 3 zeigt eine Draufsicht auf eine Wärmeübertragerplatte 27, wie sie in den Reaktorbaueinheiten der Fig. 1 und 2 für das Verdampfer/Brenner-Modul 9 und in weitestgehend ähnlicher Bauform für die anderen Module verwendbar ist. An den gegenüberliegenden Plattenschmalseiten sind je drei Öffnungen 28, 29, 30, 31, 32, 33 vorgesehen, wobei jeweils lagegleiche Öffnungen der im Stapel aufeinanderfolgenden Platten unter Bildung entsprechender Einlaß- oder Auslaßkanäle bzw. Verteiler- oder Sammelkanäle fluchtend überlappen. Bei der Platte 27 von Fig. 3 bildet das mittlere Paar sich gegenüberliegender Öffnungen 29, 32 einen Teil eines entsprechenden Sammel- bzw. Verteilerkanals beispielsweise des Verdampfers 7 und fungiert als Fluideinlaß bzw. Fluidauslaß. Dabei gelangt das Fluid über den Einlaß in die Ebene der Platte 27 und strömt dort längs einer an der Platte vorgesehenen Stütz- und Verteilerstruktur 34 zum gegenüberliegenden Auslaß, wobei es mit dem an der anderen Plattenseite entlangströmenden Medium, beispielsweise dem heißen Brennerabgas, in Wärmekontakt tritt. Die übrigen, in Fig. 3 dick umrahmt gezeichneten Öffnungen 28, 30, 31, 33 und der Plattenrand 35 bilden gasdichte Verbindungen, mit denen die übrigen Medien im Plattenstapel die betreffende Plattenschicht passieren können. Diese Öffnungen 28, 30, 31, 33 können beispielsweise Teil des Brennerinlasses 10, des Reformatgasauslasses 14, des Lufteinlasses 13 für die CO-Oxidationsstufe 2 bzw. des Verbindungskanals 20 vom verdampferseitigen Brenner 7 zum reformerseitigen Brenner 8 sein.

[0024] Fig. 4 zeigt in einer Draufsicht die kompakte Reaktorbaueinheit von Fig. 1 mit ihrer Plattenstapelbauweise, wobei in dieser Ansicht zwei Ein- bzw. Auslässe 36, 37 am einen Stapelstirnende und ein weiterer Ein-

oder Auslaß 38 am gegenüberliegenden Stapelstirnende zu erkennen sind. Zusätzlich ist deren Erstreckung in den Plattenstapelaufbau hinein zur Bildung entsprechender Einlaß- oder Auslaßkanäle bzw. Verteiler- oder Sammelkanäle 39, 40, 41 gestrichelt angedeutet. Des weiteren ist einer der inneren Verbindungskanäle 42 gestrichelt angedeutet. Die übrigen Ein- und Auslässe münden ebenfalls an den Stapelstirnenden und sind in der Ansicht von Fig. 4 von den gezeigten Ein- oder Auslässen 36, 37, 38 verdeckt.

#### Patentansprüche

1. Anlage zur Wasserdampfpreformierung eines Kohlenwasserstoffs, gekennzeichnet durch eine Reaktorbaueinheit vom Plattenstapel- und/oder Rohrbündeltyp, die einen Verdampfer (1), eine Vorreformierungseinheit (2, 3), einen Hauptreformer (4), eine CO-Entfernungseinheit (5, 6) und eine katalytische Brenneinheit (7, 8) integriert enthält, wobei zum einen der Verdampfer und der Hauptreformer mit der katalytischen Brenneinheit und zum anderen die Vorreformierungseinheit mit der CO-Entfernungseinheit jeweils über ein wärmeleitendes Trennmedium in direktem Wärmekontakt stehen.
2. Anlage nach Anspruch 1, weiter dadurch gekennzeichnet, daß
  - die katalytische Brenneinheit wenigstens zwei katalytische Brenner (7, 8) beinhaltet und
  - der Verdampfer (1) mit einem ersten (7) sowie der Hauptreformer (4) mit einem zweiten (8) der katalytischen Brenner je ein Modul (9, 19) mit Wärmeübertragerstruktur bilden.
3. Anlage nach Anspruch 1 oder 2, weiter dadurch gekennzeichnet, daß
  - die Vorreformierungseinheit eine erste (2) und eine dieser nachgeschaltete zweite Vorreformierungsstufe (3) und die CO-Entfernungseinheit eine CO-Shiftstufe (5) sowie eine CO-Oxidationsstufe (6) beinhaltet und
  - die CO-Oxidationsstufe mit der ersten Vorreformierungsstufe und die CO-Shiftstufe mit der zweiten Vorreformierungsstufe je ein Modul (12, 16) mit Wärmeübertragerstruktur bilden.
4. Anlage nach Anspruch 3 in Verbindung mit Anspruch 2, weiter dadurch gekennzeichnet, daß das Verdampfer/Brenner-Modul (9), das Oxidationsstufen/Vorreformierungs-Modul (12), das Shiftstufen/Vorreformierungs-Modul (16) und das Hauptreformer/Brenner-Modul (19) in dieser Rei-

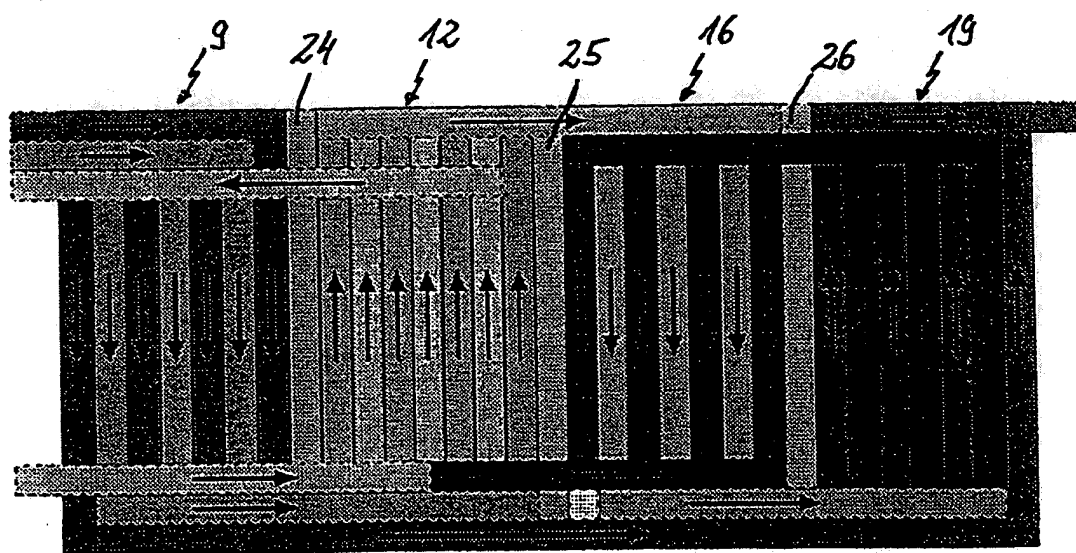
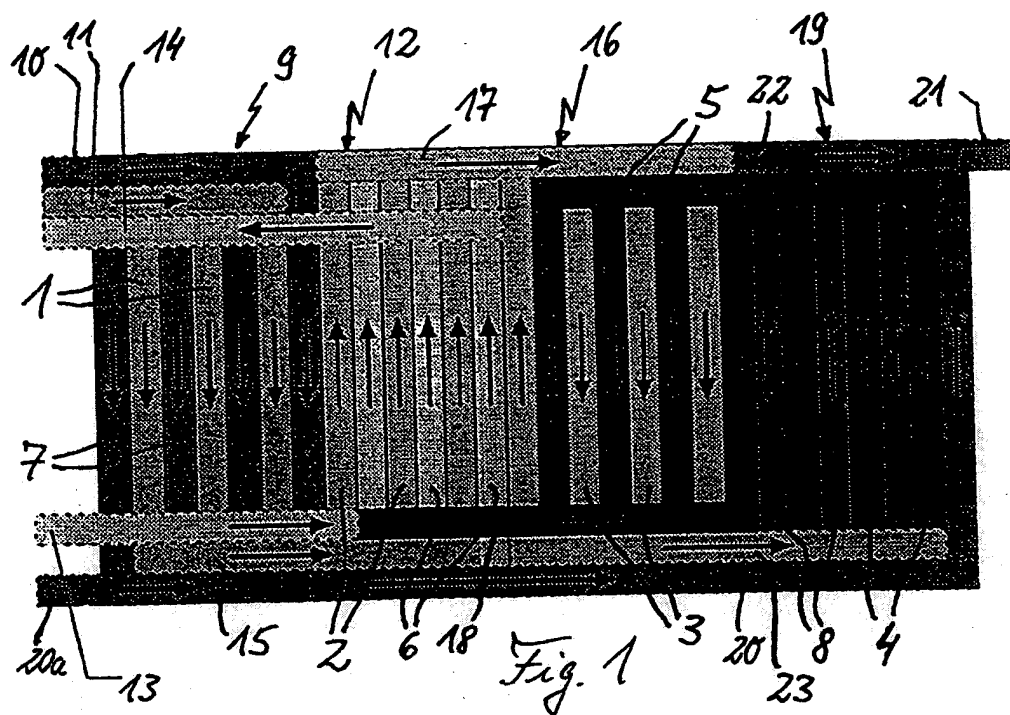
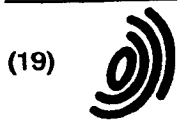


Fig. 2



Europäisches Patentamt  
European Patent Office  
Office européen des brevets



(11) EP 0 921 584 A3

(12) **EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

(88) Veröffentlichungstag A3:  
27.10.1999 Patentblatt 1999/43

(43) Veröffentlichungstag A2:  
09.06.1999 Patentblatt 1999/23

(21) Anmeldenummer: 98120914.1

(22) Anmeldetag: 04.11.1998

(51) Int. Cl.<sup>6</sup>: H01M 8/06, C01B 3/38,  
C01B 3/48, C01B 3/32,  
C01B 3/58

(84) Benannte Vertragsstaaten:  
AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LU  
MC NL PT SE  
Benannte Erstreckungsstaaten:  
AL LT LV MK RO SI

(30) Priorität: 05.12.1997 DE 19754012

(71) Anmelder:  
DBB Fuel Cell Engines GmbH  
73230 Kirchheim/Teck-Nabern (DE)

(72) Erfinder:  
• Autenrieth, Rainer  
89155 Erbach (DE)  
• Boneberg, Stefan  
89134 Blaustein (DE)

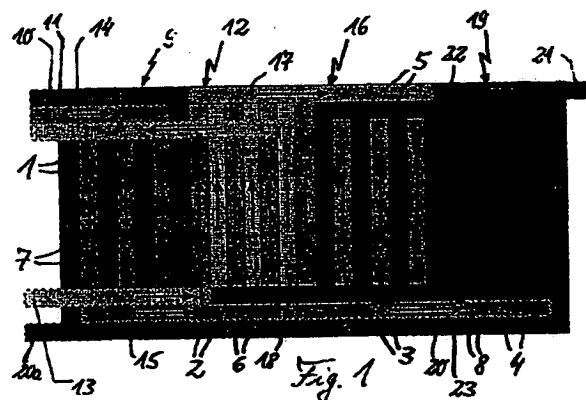
• Christen, Andreas  
53940 Kehr (DE)  
• Hell, Dietmar  
88477 Hörenhausen (DE)  
• Strobel, Barbara  
89160 Dornstadt (DE)  
• Wieland, Steffen  
70180 Stuttgart (DE)  
• Zur Megede, Detlef Dr.  
73230 Kirchheim/Teck (DE)

(74) Vertreter:  
Kocher, Klaus-Peter et al  
Daimler-Benz Aktiengesellschaft,  
FTP/S - C106  
70546 Stuttgart (DE)

(54) **Anlage zur Wasserdampfpreformierung eines Kohlenwasserstoffs**

(57) Anlage zur Wasserdampfpreformierung eines Kohlenwasserstoffs vom Plattenstapel- und/oder Rohrbündeltyp, die einen Verdampfer (1), eine Vorreformierungseinheit (2), einen Hauptreformer (4), eine CO-Entfernungseinheit (5) und eine katalytische Brenneinheit (7,8) integriert enthält, wobei zum einen der Verdampfer und der Hauptreformer mit der katalytischen Brenneinheit und zum anderen die Vorreformierungseinheit mit der CO-Entfernungseinheit in Wärmekontakt stehen.

Verwendung z.B. zur Wasserdampfpreformierung von Methanol zwecks Gewinnung von Wasserstoff für die Brennstoffzellen eines brennstoffzellenbetriebenen Kraftfahrzeugs.





Europäisches  
Patentamt

# EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung  
EP 98 12 0914

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE		
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch
P, X	EP 0 861 802 A (ENGINEERING ADVANCEMENT ASS OF ;MITSUBISHI ELECTRIC CORP (JP)) 2. September 1998 (1998-09-02) * Spalte 6, Zeile 14 - Spalte 8, Zeile 27 * * Spalte 11, Zeile 34 - Spalte 14, Zeile 23 * * Ansprüche; Abbildung 1 * -----	1-6
		KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int.Cl.6)
		RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int.Cl.6)
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt		
Recherchenort	Abschlußdatum der Recherche	Prüfer
DEN HAAG	1. September 1999	Van der Poel, W
KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A : technologischer Hintergrund O : nichtschriftliche Offenbarung P : Zwischenliteratur T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument L : aus anderen Gründen angeführtes Dokument & : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument		

EPO FORM 1503 03.92 (P44C03)